

宮城県における大気中の有害大気汚染物質濃度について

The Concentrations Transition of Hazardous Air Pollutants in Miyagi Prefecture

太田 葉 天野 直哉 吉川 弓林 佐久間 隆*¹ 菱沼 早樹子 三沢 松子
Shiori OHTA, Naoya AMANO, Yuri KIKKAWA, Takashi SAKUMA, Sakiko HISHINUMA,
Matsuko MISAWA

本県は、平成 9 年 10 月から県内 4 地点において有害大気汚染物質のモニタリング調査を実施しており、今般、測定開始年度から令和 3 年度までの 25 年間の調査結果を整理し、本県における有害大気汚染物質の濃度変化や地域特性、季節変動について取りまとめたので報告する。年平均値の推移では、解析中の物質トルエンを除き、多くの地点、物質で低濃度域への収束が見られ、近年はすべての物質で環境基準や指針値を満足していた。一方で、アクリロニトリルやホルムアルデヒドなど一部の物質は増加傾向を示した。地域の傾向としては、道路沿道に分類される「名取市」は自動車排ガスを由来とする物質の濃度が比較的高かった。一般環境に分類される「塩竈市」ではどの物質も全体的に高めの値を示す傾向があり、「大崎市」ではアルデヒド類の濃度が他の地点と比較して顕著に低い、「大河原町」ではトリクロエチレンの濃度が他の地点よりも高いという特徴が見られた。

キーワード：有害大気汚染物質；経年変化；季節変動

Key words : hazardous air pollutants ; Long-term Trend ; Seasonal Variation

1 はじめに

平成 8 年 5 月の大気汚染防止法の改正に伴い、国及び地方公共団体は有害大気汚染物質による大気汚染状況の把握に努めなければならないと定められ、本県は平成 9 年 10 月から県内 4 地点において有害大気汚染物質のモニタリング調査を開始し、現在は環境省が定める「優先取組物質」23 物質のうち 21 物質について測定を実施している。

本報は、1997 年度（平成 9 年度）から 2021 年度（令和 3 年度）までの 25 年間の調査結果を整理し、本県における有害大気汚染物質の濃度変化や地域特性、季節変動などについて把握することを目的とした。

2 方法

2.1 調査地点及び調査頻度

調査地点の概要を図 1 及び表 1 に示した。県内 4 地点で実施し、月 1 回 24 時間試料を採取した。

なお、大崎市及び大河原町については、2007 年度（平成 19 年度）以降は隔年で交互に実施した。



図 1 調査地点

表 1 調査地点の概要

調査地点	地点分類	備考
名取市	道路沿道	名取自動車排出ガス測定局
塩竈市	一般環境	塩釜一般環境大気測定局
大崎市	一般環境	古川Ⅱ一般環境大気測定局
大河原町	一般環境	仙南保健福祉事務所屋上

2.2 調査対象物質

優先取組物質 23 物質のうち、ダイオキシン類を除外し、「クロム及び三価クロム化合物」及び「六価クロム化合物」を「クロム及びその化合物」として合わせた計 21 物質について測定を実施している。

なお、トルエンの結果については別途解析中のため、本報では除外した。

2.3 試料採取及び測定方法

「有害大気汚染物質測定方法マニュアル」¹⁾に従い、揮発性有機化合物 (VOCs) は容器採取-GCMS 質量分析法、アルデヒド類は固相捕集-HPLC 法、酸化エチレンは固相捕集-溶媒抽出-GCMS 法、ベンゾ[a]ピレンはフィルタ捕集-GCMS 法、重金属類はフィルター捕集-ICP-MS 法、水銀は金アマルガム捕集加熱気化冷原子吸光法でそれぞれ捕集及び測定を行った。

3 結果

3.1 下限値の取扱い

年平均値は、12 回の測定値を算術平均して算出した。また、平均値の算出にあたり、測定値が検出下限値未満の場合は検出下限値の 1/2 値を用い、検出下限値以上かつ定量下限値未満の場合は測定値を用いた。

3.2 年平均値の濃度推移

県内 4 地点における各物質濃度の年平均値及び全国の年平均値²⁾の推移を図 2-1～図 2-20 に示した。環境基準及び指針値が設定されている 15 物質については、それらとの比較を行った。

1) VOCs

VOCs は 1997 年度（平成 9 年度）から測定を開始し、2021 年度（令和 3 年度）までの 25 年間の結果についてまとめた。ただし、塩化メチルは対象物質に追

*1 前 保健環境センター

加した2009年度(平成21年度)以降の結果を用いた。

トリクロロエチレン(図2-1)、テトラクロロエチレン(図2-2)については、それぞれ環境基準(130 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っており、全国平均と比較しても低く推移していた。一方で、大河原町のトリクロロエチレンについては、全国平均を下回るが他の地点と比較して高い値で推移しており、近傍の発生源の影響を受けている可能性がある。ベンゼン(図2-3)については、1998年度(平成10年度)及び1999年度(平成11年度)に道路沿道に分類される名取市において環境基準(3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を上回ったが、当時は全国的に濃度が高かったため全国平均は下回っていた。以降は減少傾向を示し、近年はすべての地点で低濃度域へ収束している。ジクロロメタン(図2-4)については、環境基準(150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っていた。塩竈市及び名取市において2001年度(平成13年度)から10年間ほど全国平均を上回り高い値が続いていたが、東日本大震災のあった2011年度(平成23年度)以降は全国平均と同程度の低濃度域で推移した。アクリロニトリル(図2-5)については、指針値(2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)の超過は見られないが全地点で増加傾向を示しており(表2)、特に道路沿道である名取市において2015年度(平成27年度)から顕著な増加が見られた。塩化ビニルモノマー(図2-6)については、指針値(10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回りやや減少傾向を示しながら推移しているが、アクリロニトリルと同様に2015年度(平成27年度)から名取市において濃度の増加が見られた。塩化メチル(図2-7)については、指針値(94 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っており、すべての地点で目立った増減は見られず横ばいで推移した。クロロホルム(図2-8)については、指針値(18 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っており、地点ごとにばらつきが大きかった。近年はすべての地点で低濃度域に収束し、全国平均を下回って推移している。1,2-ジクロロエタン(図2-9)、1,3-ブタジエン(図2-10)については、それぞれ指針値(1.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を下回り、全国平均と同程度で推移した。1,3-ブタジエンでは、道路沿道に分類される名取市で濃度が高い傾向があった。

2) アルデヒド類

アルデヒド類は1998年度(平成10年度)から測定を開始し、2021年度(令和3年度)までの24年間の結果についてまとめた。

アセトアルデヒド(図2-11)については、すべての地点で指針値(120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)を大きく下回っていた。一方で、測定開始年度はすべての地点で全国平均を下回っていたが、次第に上昇し、2004年度(平成16年度)頃をピークに全国平均を上回って推移した。2009年度(平成21年度)からは減少に転じ、以降は全国

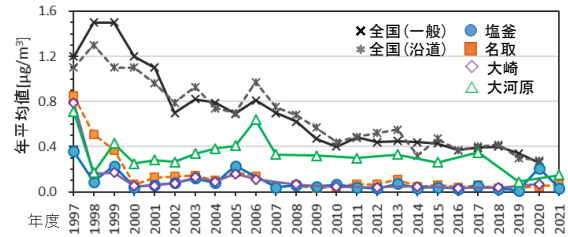


図2-1 トリクロロエチレン年平均値

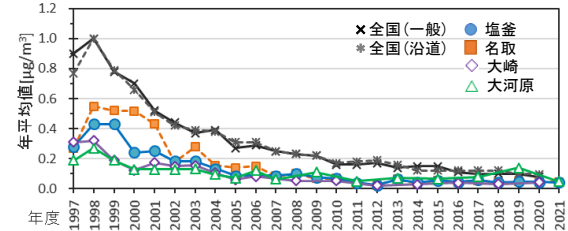


図2-2 テトラクロロエチレン年平均値

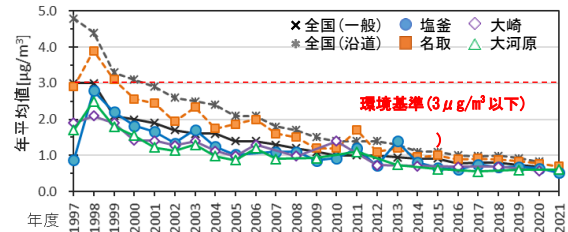


図2-3 ベンゼン年平均値

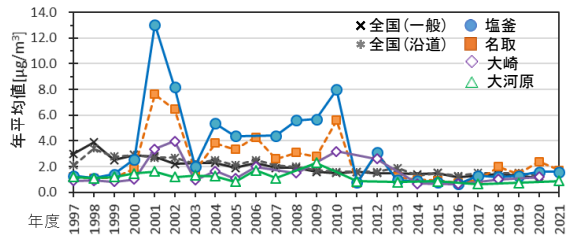


図2-4 ジクロロメタン年平均値

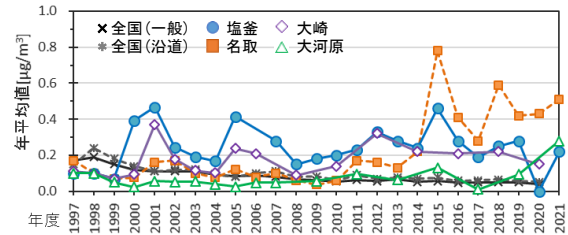


図2-5 アクリロニトリル年平均値

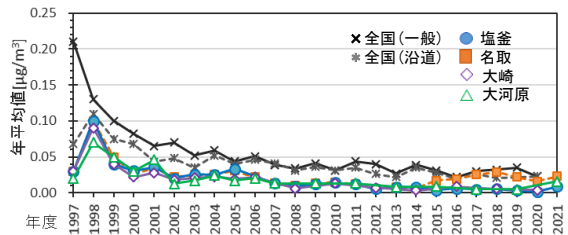


図2-6 塩化ビニルモノマー年平均値

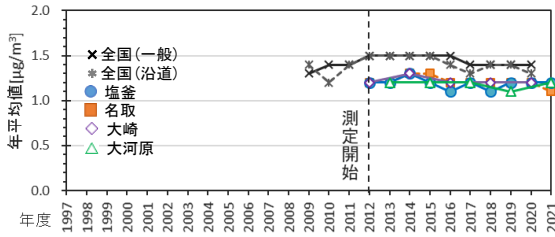


図2-7 塩化メチル年平均値

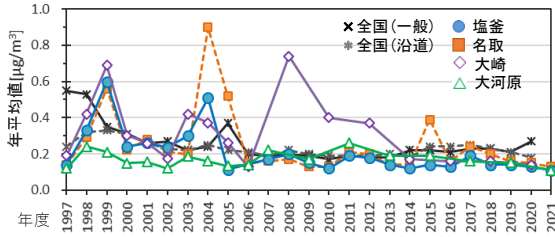


図2-8 クロロホルム年平均値

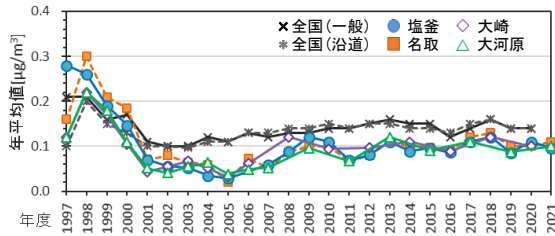


図2-9 1, 2-ジクロロエタン年平均値

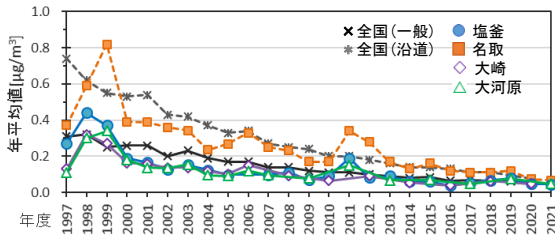


図2-10 1, 3-ブタジエン年平均値

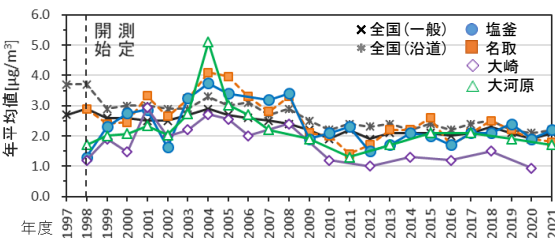


図2-11 アセトアルデヒド年平均値

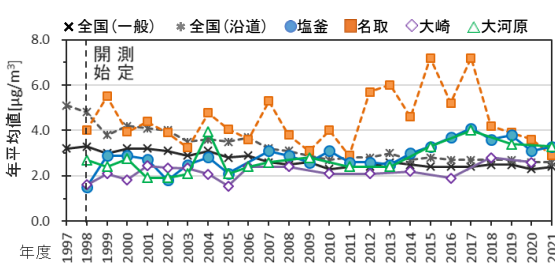


図2-12 ホルムアルデヒド年平均値

平均と同程度又は下回って横ばい傾向となっている。また、大崎市では 2001 年度（平成 13 年度）を除いて全国平均を常に下回っており、2010 年度（平成 22 年度）以降は他の地点と比較して顕著に低い濃度で推移していた。ホルムアルデヒド（図 2-12）については、すべての地点で増加傾向を示し（表 2）、特に道路沿道である名取市において顕著な増加が見られたが、2019 年度（令和元年度）からは減少傾向を示しており、コロナ禍での外出自粛による交通量の減少の影響が考えられた。塩竈市及び大河原町においては 2015 年度（平成 27 年度）頃から上昇し、以降は横ばい傾向を示している。大崎市では、アセトアルデヒドと同様に他の地点と比較して低い濃度で推移していた。

3) 酸化エチレン

酸化エチレン（図 2-13）は 2002 年度（平成 14 年度）から測定を開始し、2021 年度（令和 3 年度）までの 20 年間の結果についてまとめた。

測定開始当初の 4 年間はすべての地点で全国平均を大きく上回って変動していたが、2006 年度（平成 18 年度）からは全国平均と同程度まで低下し、2017 年度（平成 29 年度）以降は横ばいで推移している。

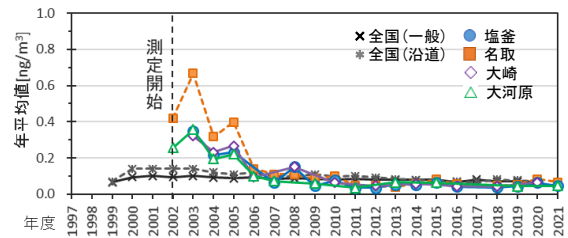


図2-13 酸化エチレン年平均値

4) ベンゾ[a]ピレン

ベンゾ[a]ピレン（図 2-14）は 1998 年度（平成 10 年度）から測定を開始し、2021 年度（令和 3 年度）までの 24 年間の結果についてまとめた。

分析開始当初から濃度の増減幅が大きく、全国平均を上下しながら変動していたが、2009 年度（平成 21 年度）頃から次第に全国平均と同程度の濃度に収束し、近年はすべての地点で全国平均を下回って推移している。

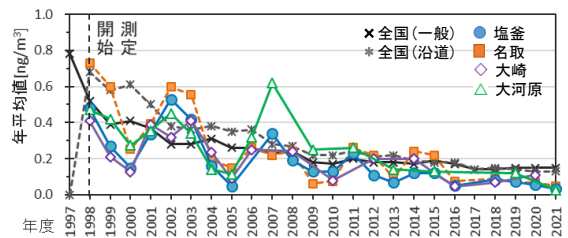


図2-14 ベンゾ[a]ピレン年平均値

5) 金属類

金属類は 2002 年度（平成 14 年度）から測定を開始

し、2021年度（令和3年度）までの20年間の結果についてまとめた。水銀は対象物質に追加した2005年度（平成17年度）以降の結果を用いた。

ニッケル化合物（図2-15）については、指針値（25mgNi/m³）を下回っているが、大崎市において2003年度（平成15年度）、2004年度（平成16年度）に全国平均を大きく上回った。これは既報³⁾において、近隣の石油燃焼施設の影響と考察されている。ヒ素及びその化合物（図2-16）については、2005年度（平成17年度）から6年間ほど全国平均を下回って推移したが、東日本大震災のあった2011年度（平成23年度）以降は全国平均と同程度まで上昇し、横ばい傾向となっている。この濃度上昇の影響で、測定開始当初から現在までの全体の傾向としては、大崎市を除く3地点で増加傾向を示した（表2）。ベリリウム及びその化合物（図2-17）については、すべての地点で測定値のほとんどが定量下限値未満であり、更にその大部分が検出下限値未満だった。測定を開始した2002年度（平成14年度）に高値を示しているが、これは当時使用していた装置の性能上、質量が軽い元素について感度が悪く、低い下限値が得られなかったことに起因する。マンガン及びその化合物（図2-18）については、指針値（140ngMn/m³）を下回っているが、道路沿道である名取市において比較的高い値を示し、2015年度（平成27年度）以降は全国平均を上回って推移している。クロム及びその化合物（図2-19）については、塩竈市において2003年度（平成15年度）及び2004年度（平成16年度）に全国平均を上回ったが、以降は全ての地点で全国平均を下回り、低濃度域で横ばいで推移した。水銀及びその化合物（図2-20）については、測定開始以降すべての地点で指針値（40mgHg/m³）及び全国平均を下回り、目立った増減は見られず横ばいで推移した。

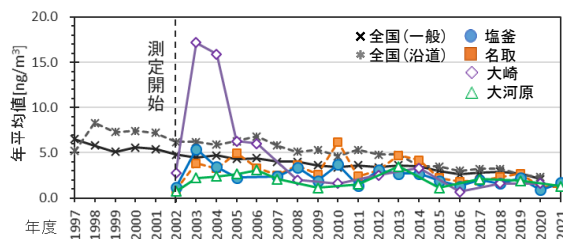


図2-15 ニッケル化合物年平均值

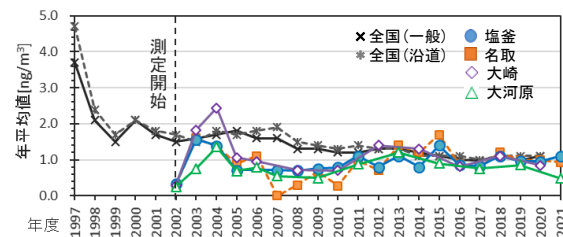


図2-16 ヒ素及びその化合物年平均值

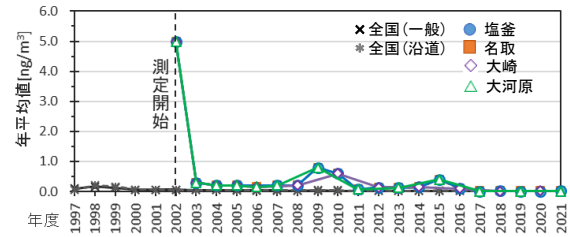


図2-17 ベリリウム及びその化合物年平均值

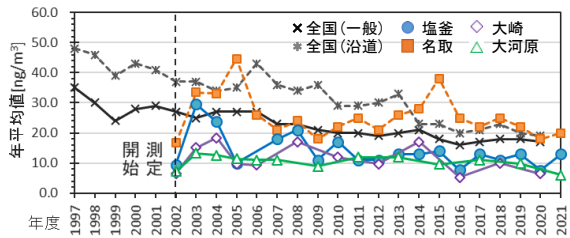


図2-18 マンガン及びその化合物年平均值

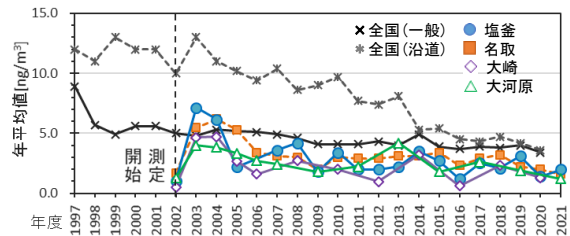


図2-19 クロム及びその化合物年平均值

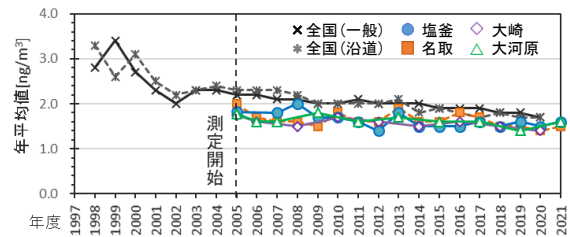


図2-20 水銀及びその化合物年平均值

表2 年平均値の増減傾向（近似曲線の傾き）

物質名	名取市	塩竈市	大崎市	大河原町
トリクロロエチレン	-0.016	-0.0069	-0.012	-0.0091
テトラクロロエチレン	-0.018	-0.013	-0.011	-0.0052
ベンゼン	-0.10	-0.057	-0.057	-0.056
ジクロロメタン	-0.077	-0.15	-0.016	-0.026
アクリロニトリル	0.018	0.0024	0.0038	0.0037
塩化ビニルモノマー	-0.0013	-0.0020	-0.0019	-0.0015
塩化メチル	-0.010	-0.0042	-0.0050	-0.0050
クロロホルム	-0.0081	-0.010	-0.0087	-0.00050
1,2-ジクロロエタン	-0.0024	-0.0029	-0.0008	-0.0011
1,3-ブタジエン	-0.019	-0.010	-0.0082	-0.0073
アセトアルデヒド	-0.058	-0.030	-0.048	-0.032
ホルムアルデヒド	0.024	0.059	0.022	0.050
酸化エチレン	-0.021	-0.012	-0.014	-0.013
ベンゾ[a]ピレン	-0.022	-0.015	-0.011	-0.015
ニッケル化合物	-0.082	-0.091	-0.57	-0.018
ヒ素及びその化合物	0.015	0.0067	-0.020	0.0032
ベリリウム及びその化合物	-0.083	-0.090	-0.10	-0.092
マンガン及びその化合物	-0.36	-0.48	-0.25	-0.13
クロム及びその化合物	-0.11	-0.12	-0.087	-0.062
水銀及びその化合物	-0.016	-0.021	-0.014	-0.011

3.3 季節変動

各物質の季節的な変動を把握するため、2012年度（平成24年度）から2021年度（令和3年度）までの10年間に得られた測定値を用いて各月の平均値を算出し、図3-1～図3-20に示した。

なお、大崎市及び大河原町は隔年で調査を実施しているため、同じ10年間で5年分の測定値を集計した。

1) VOCs

トリクロロエチレン（図3-1）については、大河原町で年間を通して他の地点よりも比較的高い傾向があった。トリクロロエチレンは製造業での油除去や代替フロン原料などに使用されるため、近傍に発生源となる事業所等があると考えられるが、環境省が提供するPRTRインフォメーション広場⁴⁾では、トリクロロエチレンの排出・移動等について届出のある事業所は確認できなかった。その他の地点については、季節的な変動は見られず、一年を通して安定して推移していた。テトラクロロエチレン（図3-2）については、いずれの地点でも季節的な変動はあまり見られず、寒冷期にやや高くなる印象を受けた。トリクロロエチレンと同様に大河原町において比較的に濃度が高く、7月に大きなピークが見られた。トリクロロエチレンと同じ用途で使用される物質であるため、同じ発生源の影響を受けている可能性が考えられる。ベンゼン（図3-3）、1,3-ブタジエン（図3-10）については、全地点で寒冷期に高くなる傾向が見られた。いずれも自動車排ガスが主な発生源とされており、一般環境に分類される3地点よりも、道路沿道に分類される名取市において年間を通して濃度が高かった。ジクロロメタン（図3-4）、塩化ビニルモノマー（図3-6）、1,2-ジクロロエタン（図3-9）については、夏季と冬季にやや濃度が上昇する傾向が見られた。特に塩化ビニルモノマーでは、道路沿道に分類される名取市において、温暖期に他の地点よりも高い値で推移していた。1,2-ジクロロエタンでは地点間の違いはあまり見られなかった。アクリロニトリル（図3-5）については、地点間で濃度差はあるものの、おおむね温暖期に高くなる傾向があった。前項の年平均値の推移では、名取市でアクリロニトリル濃度（図2-5）と塩化ビニルモノマー濃度（図2-6）が同じ時期から上昇していることを報告したが、季節変動ではそれぞれ異なった推移を示すことから、それぞれ異なる濃度上昇要因が存在すると考えられる。塩化メチル（図3-7）については、地点間での差異や季節的な変動は見られず、一年を通して安定して推移していた。クロロホルム（図3-8）については、名取市で12月にピークが見られ、大崎市では4月から7月に濃度の上昇が見られた。それぞれ、周辺に発生源となる事業所等があると考えられる。塩化メチル及び大河原町では季節的な変動は見られず、一年を通して安定して推移していた。

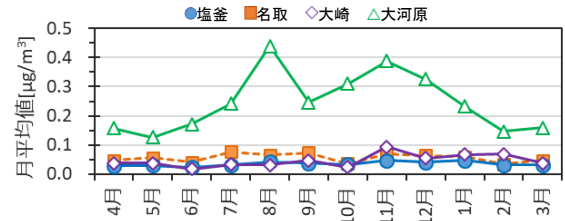


図3-1 トリクロロエチレン経月変化

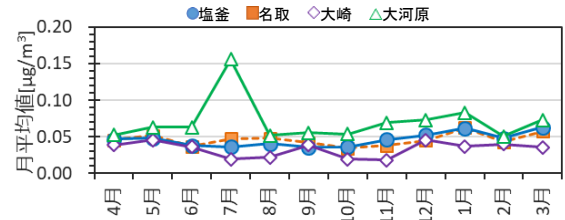


図3-2 テトラクロロエチレン経月変化

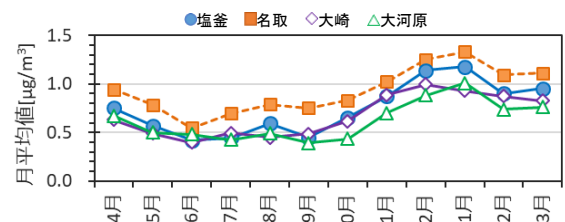


図3-3 ベンゼン経月変化

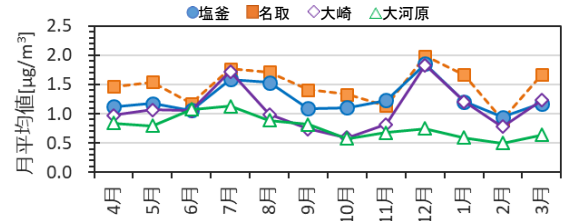


図3-4 ジクロロメタン経月変化

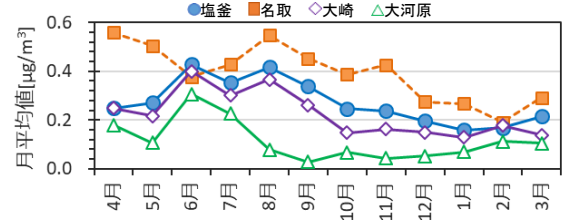


図3-5 アクリロニトリル経月変化

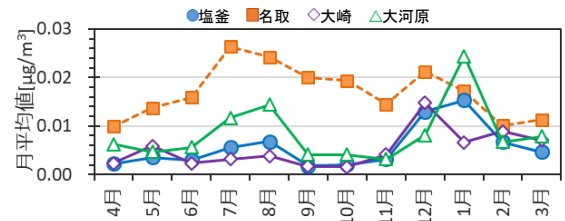


図3-6 塩化ビニルモノマー経月変化

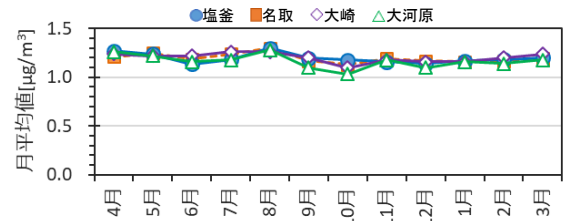


図3-7 塩化メチル経月変化

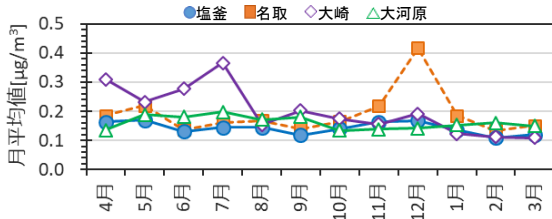


図 3-8 クロロホルム経月変化

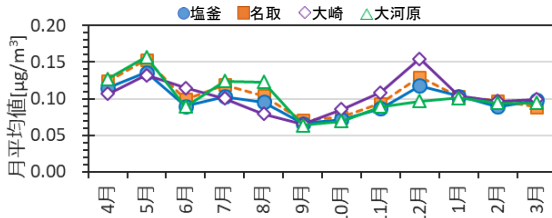


図 3-9 1, 2-ジクロロエタン経月変化

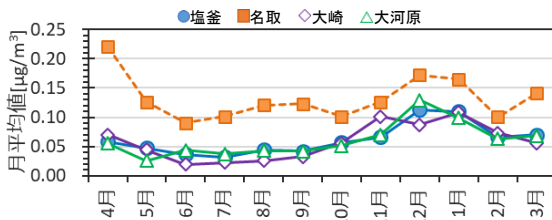


図 3-10 1, 3-ブタジエン経月変化

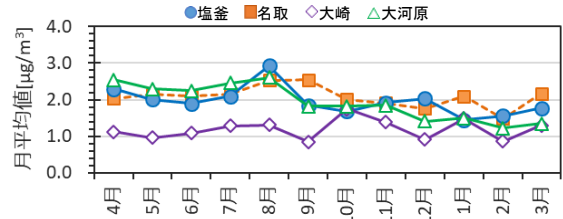


図 3-11 アセトアルデヒド経月変化

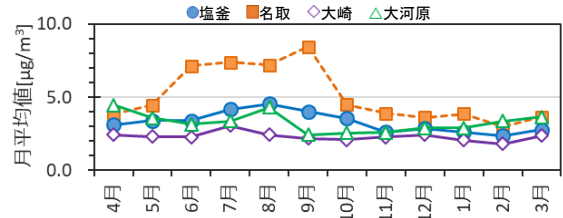


図 3-12 ホルムアルデヒド経月変化

表 3 道路交通センサス (H27 年度版) の抜粋

地点	道路種別	車線数	濃度 (µg/m³)	
			昼12時間 (小型車及び大型車)	24時間推計 (小型車及び大型車)
名取市	一般国道4号	4	36,047	51,908
塩釜市	一般国道45号	2	15,293	18,046
大崎市	一般国道108号	2	7,854	10,210
大河原町	一般国道4号	2	21,894	29,776

2) アルデヒド類

アセトアルデヒド (図 3-11)、ホルムアルデヒド (図 3-12) については、大崎市を除いた 3 地点では、温暖期にやや増加する傾向が見られた。特に、道路沿道に分類される名取市のホルムアルデヒドについては、6月から9月に顕著な濃度の上昇が見られ、温暖期の濃度が年平均値の上昇に影響していることが伺えた。一方で、大崎市においては、前項の年平均の濃度推移 (図 2-12) では他の地点と比較して低い濃度で推移していることを報告したが、経月変化についても季節的な変動は見られなかった。温暖期にも濃度が上昇せず、一年を通して安定して推移しており、その結果として年平均値が低くなるという点で特徴的だった。

アルデヒド類の発生源には自動車排ガスや事業場及び家庭からの排出のほか、VOCs などからの二次生成など複数あるが、今般は国土交通省が実施している全国道路・街路交通情勢調査 (道路交通センサス、平成 27 年度版) ⁵⁾ を用いて各調査地に最も近い道路の交通量を確認したところ、昼 12 時間の合計及び 24 時間の推計ともに大崎市が最も少なく、大気中アルデヒド類濃度に影響する一因として考えられる。

3) 酸化エチレン

酸化エチレン (図 3-13) については、地点間での差異は見られず、温暖期に濃度がやや上昇する傾向が見られたが、全体としては一年を通して安定して推移していた。

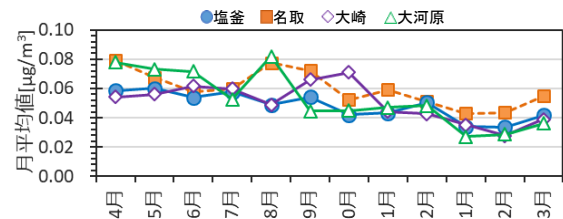


図 3-13 酸化エチレン経月変化

4) ベンゾ[a]ピレン

ベンゾ[a]ピレン (図 3-14) については、地点間での差異はあまり見られず、寒冷期に濃度がやや上昇していた。11月及び3月に大崎市においてピークが見られたが、集計期間のうち1度のみ高値を示した影響で平均値が吊り上がったものである。近傍において、ベンゾ[a]ピレンの排出・移動等について届出のある事業所は確認できなかった。

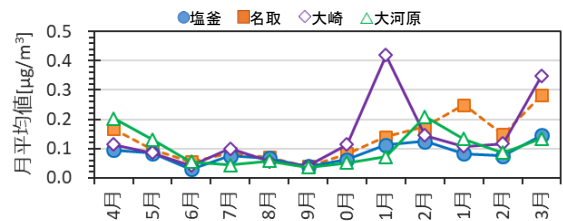


図 3-14 ベンゾ[a]ピレン経月変化

5) 金属類

ニッケル化合物（図 3-15）、ヒ素及びその化合物（図 3-16）については、地点間でのばらつきが大きく、全体として温暖期に濃度がやや上昇する印象があった。ベリリウム及びその化合物（図 3-17）、水銀及びその化合物（図 3-20）については、季節的な変動は見られず、一年を通して安定的に推移していた。マンガン及びその化合物（図 3-18）については、名取市では一年を通して他の地点よりも高く、塩竈市、大崎市、大河原町では、大陸から黄砂が飛来する時期である3月から5月頃にピークが見られた。クロム及びその化合物（図 3-19）については、名取市及び大崎市では一年を通して安定して推移していた。塩竈市では5月、大河原町では4月にピークが見られ、春先に濃度が上昇する傾向があった。

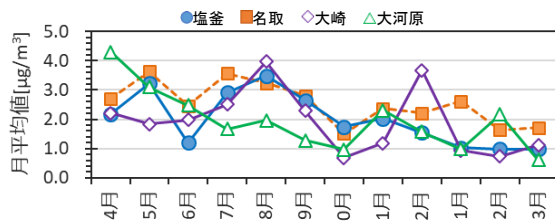


図 3-15 ニッケル化合物経月変化

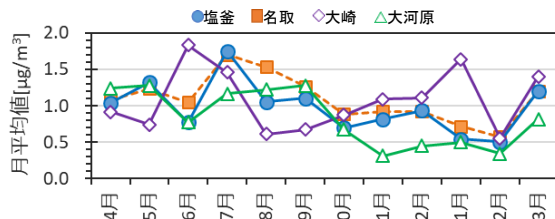


図 3-16 ヒ素及びその化合物経月変化

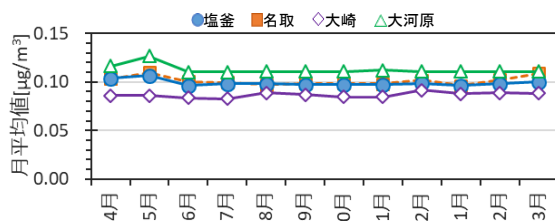


図 3-17 ベリリウム及びその化合物経月変化

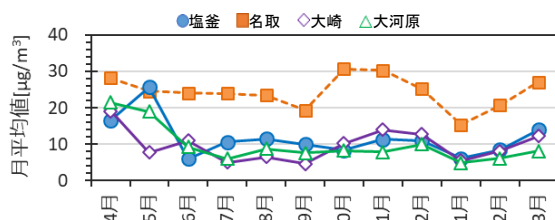


図 3-18 マンガン及びその化合物経月変化

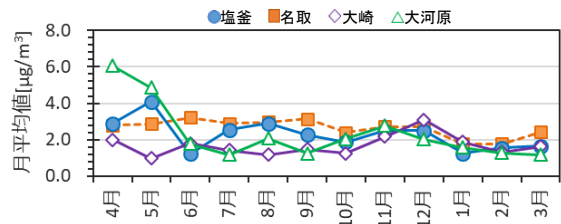


図 3-19 クロム及びその化合物経月変化

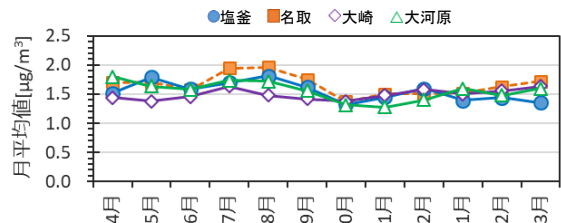


図 3-20 水銀及びその化合物経月変化

4 まとめ

年平均値の推移では、全体の傾向として減少傾向を示し、低濃度域への収束が見られ、近年はすべての物質で環境基準や指針値を満足していた。一方で、アクリロニトリルやホルムアルデヒドなど一部の物質は増加傾向を示し、今後の調査結果を注視していく必要がある。

地域の傾向としては、道路沿道に分類される名取市では、ベンゼン、1,3-ブタジエン、ホルムアルデヒドなどの自動車排ガスが主な由来とされている物質の濃度が他地点よりも高い傾向があった。塩竈市では、一般環境に分類される3地点のうちでは、どの物質も全体的に高め値を示す傾向があった。大崎市では、アルデヒド類の濃度が他の地点と比較して顕著に低い特徴が見られた。大河原町では、環境基準以下ではあるが、トリクロロエチレンの濃度が他の地点よりも高い特徴が見られた。

今後はコロナ禍の終息とともに経済活動が回復する時期となるため、各地点の濃度変化を注視し、引き続きデータを蓄積していく予定としている。

5 参考文献

- 1) 有害大気汚染物質測定方法マニュアル（環境省、平成 23 年 3 月改訂版）
- 2) 環境省 有害大気モニタリング調査結果 (<https://www.env.go.jp/air/osen/monitoring/index.html>)
- 3) 佐久間隆：宮城県保健環境センター年報、第 25 号、p.88 (2007)
- 4) 環境省 PRTR インフォメーション広場 (<https://www.env.go.jp/chemi/prtr/risk0.html>)
- 5) 国土交通省 全国道路・街路交通情勢調査 (<https://www.mlit.go.jp/road/census/h27/>)